Aus dem Institut für Medizinische Physik und Biophysik
der Georg-August-Universität zu Göttingen
Direktor: Professor Dr. E. Witte

Zur bevorzugten Rekombination von Ionen in Gasen unter hohem Druck

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Georg-August-Universität zu Göttingen

vorgelegt
von
Reinhard Koepp
aus Berlin

Göttingen 1968

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41544311_0067

Aus dem Institut für Medizinische Physik und Biophysik
der Georg-August-Universität zu Göttingen
Direktor: Professor Dr. E. Witte

Zur bevorzugten Rekombination von Ionen in Gasen unter hohem Druck

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Georg-August-Universität zu Göttingen

vorgelegt
von
Reinhard Koepp
aus Berlin

Göttingen 1968

D 7

Referent:	Professor Dr. H.-U. Harten
Korreferent:	Professor Dr. R. Hilsch
Tag der mündlichen Prüfung:	11. Juli 1968

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

G l i e d e r u n g

I. Einleitung

II. Problemstellung
- a) Bevorzugte Rekombination
- b) Weitere Rekombinationsverluste
- c) Parameter zur Erhöhung der bevorzugten Rekombination

III. Beschreibung der Apparatur
- a) Meßkammer
- b) Meßgase
- c) Netzgeräte und Strommeßgerät
- d) Röntgenröhre
- e) Konstanz der Versorgungsspannungen

IV. Messungen und Auswertung der Ergebnisse
- a) Aufnahme der Strom-Spannungs-Kurven
- b) Korrektur auf Schwächung der Röntgenstrahlen
- c) Jaffé-Theorie der Anfangsrekombination
- d) Jaffé-Zanstra-Verfahren
- e) Auswertung

V. Ergebnisse
- a) Darstellung der Ergebnisse
- b) Fehlerbetrachtung
- c) Ergebnisse anderer Autoren
- d) Vergleich der Ergebnisse mit der Theorie

VI. Zusammenfassung

VII. Literatur

Zur bevorzugten Rekombination von Ionen in Gasen unter hohem Druck

I. Einleitung

Die bevorzugte Rekombination von Ionen ist ein Prozeß, der bisher vielfach aufgrund theoretischer Überlegungen [3], [12], [17], [23] - [27], [29], [40] vermutet, aber bis in die neuere Zeit nicht eingehend experimentell untersucht worden ist. Die Arbeiten früherer Jahre an hochkomprimierten Gasen hatten großenteils schwerwiegende experimentelle Mängel, die Messungen an dielektrischen Flüssigkeiten sind zudem mit großen Unsicherheiten behaftet, die von der Messung der absorbierten Energie herrühren.

Ziel dieser Arbeit war es daher, Untersuchungen der bevorzugten Rekombination an Gasen unter sauberen Bedingungen durchzuführen und die Ergebnisse theoretisch zu begründen.

II. Problemstellung

a) Bevorzugte Rekombination

Unter bevorzugter Rekombination versteht man den Prozeß der Wiedervereinigung eines Elektrons und seines positiven " Mutterions" , der dann eintritt, wenn ein im Ionisationsakt gebildetes Elektron nicht genug kinetische Energie erhielt, um dem Coulombpotential des Mutterions zu entrinnen.

Denkt man sich um das festgehaltene Mutterion eine Kugel mit dem Radius R_k, an deren Oberfläche Coulombenergie und thermische

Energie der Gasmoleküle gleich sind

$$\frac{e^2}{R_k} = \frac{3}{2} k T , \qquad (1)$$

e = Elementarladung
k = Boltzmannkonstante
T = absolute Temperatur

so gilt das Elektron als entronnen, wenn es diese Kugeloberfläche durchstoßen kann. Wird es dagegen noch in einem Abstand

$$r << R_k = \frac{e^2}{\frac{3}{2} k T} \qquad (2)$$

auf thermische Geschwindigkeit abgebremst (" thermalisiert"), so wird es vom Mutterion wieder eingefangen.

Da der " Coulombradius" R_k bei Zimmertemperatur $R_k \approx 350$ Å beträgt, müßte man zur wirksamen Unterbindung der bevorzugten Rekombination, d.h. zur Trennung zweier Ladungen im Abstand $r << R_k$, von außen Feldstärken anlegen, die 10^6 V/cm bei weitem übersteigen. Vorher kommt es aber zum Durchschlag (" Ionenmultiplikation"). Ein gewisser Prozentsatz der Elektronen ist also mit elektrischen Feldern nicht zu extrahieren: sie rekombinieren bevorzugt.

In dieser Arbeit wurde daher ein indirekter Weg zur Bestimmung des Einflusses der bevorzugten Rekombination auf den Ionisationsstrom beschritten. Vorausgesetzt wurde, daß mit Erhöhung des Gasdrucks in einem Meßkondensator bei konstant gehaltener eingestrahlter Röntgenenergie die Anzahl der ge-

bildeten Ionenpaare proportional zur Gasdichte ansteigt und damit der Sättigungsstrom nach der Beziehung

$$i_S = C \cdot \rho \tag{3}$$

verläuft.

Nach Bestimmung des Stromes i, der alle Ionen enthält, die nicht der bevorzugten Rekombination unterliegen, kann man so die Wahrscheinlichkeit für die bevorzugte Rekombination

$$\varphi_{b.R.} = 1 - \frac{i}{i_S} \tag{4}$$

gewinnen.

b) Weitere Rekombinationsverluste

In vielen Fällen ist es aber schwierig, diesen Strom i zu bestimmen. Außer der bevorzugten Rekombination liegen nämlich noch weitere Rekombinationsverluste vor, die je nach Versuchsbedingungen vorherrschend sein können.

Während der Wanderung der Ionen zu den Elektroden im elektrischen Feld verschwindet ein Teil derselben durch zufällige Stöße nach dem Rekombinationsgesetz

$$\frac{dn}{dt} = - \alpha \cdot n^2 \; . \tag{5}$$

($n_+ = n_- = n$ = Ladungsträgerdichte)

Diesen Ladungsverlust nennt man Volumenrekombination mit dem Rekombinationskoeffizienten α. Er findet statt bei homogener Ladungsverteilung und läßt sich schon bei geringen Feldstärken ($E \approx 100$ V/cm) unterbinden [20], [21], [30], [31], [37], [39].

Die vorwiegend in der Nähe der Sekundärelektronen-Bahnen gebildeten Ionen (" Ionenschläuche") rekombinieren jedoch wegen ihrer lokal erhöhten Dichte schneller als bei homogener Ionenverteilung. Daher müssen die angelegten elektrischen Felder höhere Beträge erreichen, um eine Stromsättigung auch bezüglich dieser Anfangsrekombination zu erhalten [15], [16], [34].

Mit Erhöhung des Drucks - eine Versuchsbedingung, die auch die bevorzugte Rekombination erst hervortreten läßt (Abs. II c) - werden Ionen in zunehmendem Maße in kleineren Bereichen gebildet, so daß der Verlust durch Anfangsrekombination den durch Volumenrekombination überwiegt [32]. Die zur Unterbindung der Anfangsrekombination bei hohen Drucken notwendigen Feldstärken können dann wiederum so hoch werden, daß Ionenmultiplikation durch Stoßionisation auftritt.

Aus diesem Grunde muß der " Sättigungsstrom " bezüglich der Anfangsrekombination nach einem analytischen Verfahren aus den bei geringen Feldstärken gemessenen Ionenströmen gewonnen werden. Durch Vergleich dieses " Sättigungsstromes" mit dem nach Gl. (3) erwarteten Wert wird der Verlust durch bevorzugte Rekombination ermittelt.

c) Parameter zur Erhöhung der bevorzugten Rekombination

Der Einfluß der bevorzugten Rekombination ist bei Gasen unter Normaldruck nicht meßbar vorhanden. Zur Erhöhung des Effektes boten sich aber folgende Parameter an:

1. Erhöhung des Druckes: Da der "Coulombradius" R_c nach Gl. (2) unabhängig vom Druck ist, gelangen mit Erhöhung der Dichte immer mehr Gasmolekeln in die entsprechende Kugel hinein, die das gebildete Elektron thermalisieren können.

2. Erhöhung der Anlagerungswahrscheinlichkeit: Es ist immer vermutet worden [12], [14], [24], [40], daß die bevorzugte Rekombination in verschiedenen Gasen wegen des unterschiedlichen Anlagerungsverhaltens für Elektronen stark gegen stark in Erscheinung treten kann. Starke Anlagerung sollte zu erhöhter Wahrscheinlichkeit der Thermalisierung des Elektrons innerhalb der Coulombkugel R_c führen.

In dieser Arbeit wurden Sauerstoff (starke Anlagerung), Stickstoff, Helium und Argon (keine Anlagerung) sowie Luft (intermediäres Verhalten) untersucht.

3. Erhöhung der Temperatur: Nach Gl. (2) sollte eine Erhöhung der Temperatur T die bevorzugte Rekombination vermindern. Der Einfluß der Temperatur ist jedoch gering und so wurde von dieser Möglichkeit des Studiums der bevorzugten Rekombination kein Gebrauch gemacht.

III. Beschreibung der Apparatur

a) Meßkammer

Da rekombinationsfreier Sauerstoff verwendet werden sollte, stand die Konstruktion der Kammer unter der Forderung, daß keine oxydierbaren Materialien für Elektroden und Isolation verwendet werden durften. Die obere Druckgrenze war durch den von den Herstellern von Druckgasen gelieferten maximalen Flaschendruck (200 atü) gegeben.

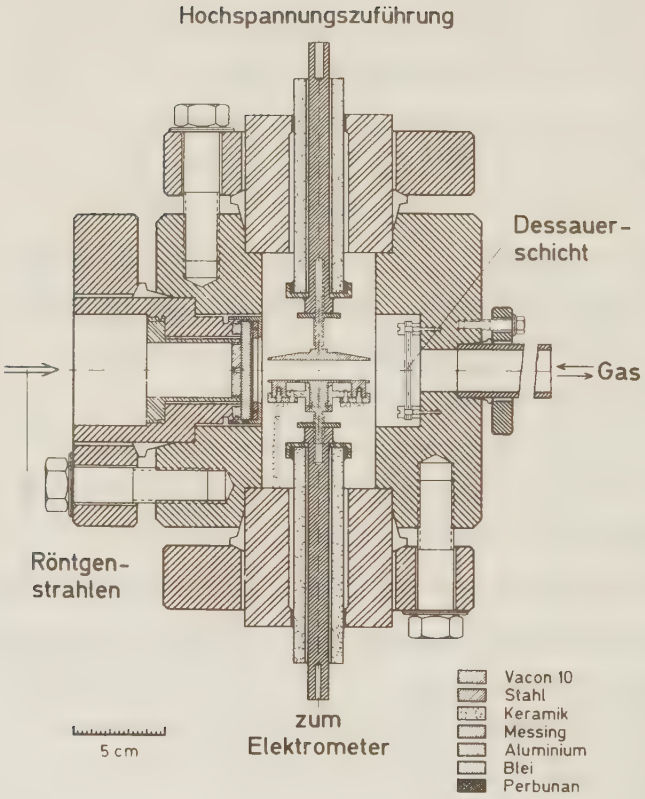

Abb. 1: Konstruktionszeichnung der Hochdruck-Meßkammer.

Eine Konstruktionszeichnung der Meßkammer zeigt die Abb. 1. Das Gehäuse ist ein kommerzielles Kreuzstück aus Stahl für Hochdruckarmaturen (Fa. Ermeto, Bielefeld). Die Abdichtung erfolgte durch Anpressung von Stahl auf Stahl in der folgenden Weise: ein glasharter Stahlschneidring überträgt die Kraft von einem darübergelegten Flansch, der mit kräftigen Schrauben angezogen wird, auf ein Rohr. Beim ersten Zusammenbau schneidet der Schneidring sich unter Aufwerfung einer Wulst in die Außenwandung des Rohres ein, das mit seiner Stirnfläche auf eine Planfläche des Kreuzstückes gepresst wird. Diese beiden Flächen bilden eine hochvakuumdichte Verbindung.

Auf diese Weise wurden die Rohre der Gaszuführung, die Zuführung der Hochspannung, die Stromdurchführung zum Elektrometer und das Eintrittsfenster für die Röntgenstrahlen am Gehäuse angebracht.

Die Durchführungen für Hochspannung und insbesondere für den abzuleitenden Ionisationsstrom mußten hochisoliert in das Gehäuse geführt werden. Wegen der Sauerstoffverträglichkeit und Druckfestigkeit fand eine Keramikisolation (A 18, Firma Stemag, Lauf b. Nürnberg) Verwendung, die der Lieferant mit den Metallteilen der Apparatur hart verlötet hatte. Diese Metallteile bestehen aus thermischen Gründen aus Vacon 10 (28 % Ni, 18 % Co, 54 % Fe).

Der Abstand von Hochspannungsplatte (Ø 57 mm) und Meßplattensystem aus Messing konnte mit Gewinde von 0 bis 1,92 cm verstellt werden. Die Meßplatte (Ø 23 mm) war von

einem Schutzring ($\varnothing_a$ 57 mm, Luftspalt zwischen Meßplatte und Schutzring 0,15 mm) umgeben, so daß ein homogenes elektrisches Feld im Meßvolumen vorlag. Der Isolator zwischen Meßplatte und Schutzring bestand aus Stenan (Firma Stemag, Lauf b. Nürnberg), einem Material, das erst nach der mechanischen Verarbeitung gebrannt wird. Das Strahleneintrittsfenster aus Reinaluminium (Ø 54 mm, Dicke 6 mm) war im Hinblick auf eine möglichst geringe Schwächung der Röntgenstrahlen so dünn gewählt, daß es beim Vorversuch mit Wasserdruck von 300 atü eine leichte Ausbeulung zeigte. Die Dichtung erfolgte mit einem Perbunanring. Das Röntgenbündel wurde durch eine davor liegende Meßblende aus Blei (1 x 28 mm^2) begrenzt und lag zentral zwischen den Platten. Die Abweichung von der Kondensatormitte war nach der Justierung < 0,2 mm (Kontrolle durch Photographien).

Zur Verhinderung von Rückstrahlung von der gegenüberliegenden Stahlwand trafen die Strahlen auf eine Dessauerschicht, in der das Röntgenbündel der Reihe nach in 1 mm Teflon, 1 mm Al, 1 mm Cu und 1 mm Pb absorbiert wurde.

b) Meßgase

In Abb. 2 ist ein Prinzipbild des Aufbaus der Druckgas- und Vakuumleitungen zu sehen. Von der Druckflasche, die außerhalb des Meßraumes stand, führte eine dünne Rohrleitung (Innendurchmesser 4 mm) zur Apparatur, die im wesentlichen aus Rohren mit einem Innendurchmesser von 22 mm bestand (Kompromiß zwischen gutem Strömungsquerschnitt für die Eva-

kuierung und geringem Volumen hinsichtlich des Gasverbrauchs). Die eingezeichneten Ventile waren Kugelhähne, die bei Offenstellung die volle Öffnung von 22 mm freigaben.

Die Druckmessung erfolgte mit Präzisionsrohrfedermanometern der Güteklasse 0,6 mit Werksattest. Es standen 10 Manometer mit verschiedenen Meßbereichen zur Verfügung, so daß der Fehler der Druckmessung immer < 1 % gehalten werden konnte.

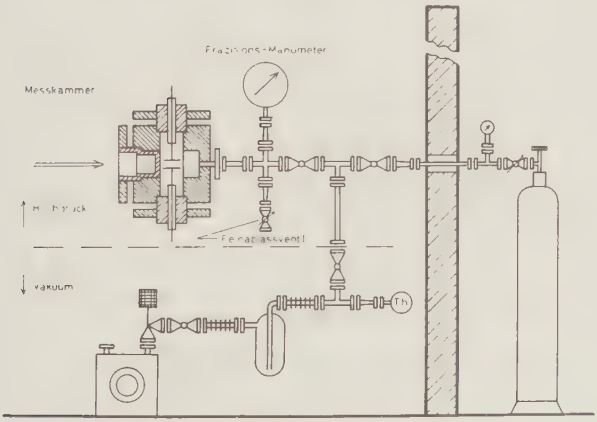

Abb. 2: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus.

Ein Nadelventil unterhalb des Manometers erlaubte eine Feineinstellung des Drucks durch vorsichtiges Gasablassen. In der Leitung zu den Vakuumpumpen (2 Pumpen D 6) befand sich eine Kühlfalle, die mit einem Alkohol-Trockeneis-Gemisch ständig auf einer Temperatur von - 78° C gehalten

wurde. Auf diese Weise sollte eine Rückdiffusion von Pumpenöl in das Hochdruckgefäß unterbunden und gleichzeitig eine Reinigung der Kammer von H_2O-Dampf erzielt werden. Mit den beiden Pumpen konnte man ein Vakuum von 10^{-2} Torr in relativ kurzer Zeit erreichen. Die Vakuumdichtigkeit lag bei $\approx 10^{-4}$ Torr . l/sec. Der Druckabfall betrug bei 200 Atm maximal 0,2 Atm/h, konnte also während der Meßzeit von ca. 20 min für die Aufnahme einer Kurve vernachlässigt werden.

Reinheit der Gase: Verwendung fanden folgende Gase der Messer Griesheim AG, Kassel:

Sauerstoff reinst (99,9%; H_2O < 50 ppm, N_2 + Ar < 1000 ppm),

Stickstoff spezial (99,99% einschl. Edelgase; O_2 < 5 ppm, H_2O < 1,5 ppm),

" Luft" (ein Gemisch aus diesen beiden Gasen im Verhältnis 21,0 vol.% O_2; 79,0 vol.% N_2).

c) Netzgeräte und Strommeßgerät

Für die Erzeugung der Kammer-Hochspannungen standen drei hochstabilisierte Netzgeräte mit Spannungsbereichen 250 V bis 2,5 kV bzw. 2 kV bis 10 kV bzw. 12 kV bis 20 kV zur Verfügung. Die Spannungen wurden ständig mit einem Spannungsmesser der Güteklasse 0,5 überprüft.

Die Ionisationsströme wurden mit einem Schwingkondensator-Elektrometer (Modell 31 CV, Firma Cary, Monrovia, USA) als Spannungsabfall an einem Widerstand von 10^{11} Ω ($\pm$ 10 %) bzw. 10^8 Ω ($\pm$ 1 %) gemessen. Die Anzeige erfolgte durch ein Digital-Voltmeter, das eine Größenordnung genauer anzeigte

als das Meßgerät, so daß die Werte unverfälscht und ohne Ermüdung des Experimentators abgelesen werden konnten. Es ergaben sich Ströme von 10^{-13} A bis 10^{-9} A, je nach Röntgenenergie, Gasart, Druck und Feldstärke.

Der Isolationswiderstand zwischen Meßplatte und Erde war besser als 10^{16} Ω.

Die Anzeige der Kombination Schwingkondensatorelektrometer-Digitalvoltmeter wurde häufig mit einem Spannungsgeber der Genauigkeit 0,1 % nachgeeicht.

d) Röntgenröhre

Zur Ionisation diente ein 150 kV-Materialprüfungs-Röntgenrohr (Firma C.H.F. Müller, Hamburg), das bei fast allen Versuchen mit einer Röhrenspannung von U_A = 50 kV und einem Röntgenstrom von i_A = 30 mA betrieben wurde. In einigen Fällen waren andere Röhrendaten (120 kV, 10 mA; 50 kV, 3 mA und 75 kV, 10 mA) eingestellt. Die Konstanz der Röhrenspannung (Eingangsspannung am Hochspannungstransformator) und des Röhrenstromes konnte mit zwei Drehspulinstrumenten (Güteklasse 0,5 % bzw. 0,2 %) überprüft werden. Die Filterung der Strahlen erfolgte durch 2 mm Al-Gleichwert der Röntgenröhre und durch das Eintrittsfenster (6 mm Al).

e) Konstanz der Versorgungsspannungen

Alle Versorgungsspannungen erzeugte ein rotierender 5 kVA-Konstanter, dem die Röntgenanlage direkt, die übrigen Verbraucher über einen weiteren 2,4 kVA-Stabilisator nach-

geschaltet waren. Durch Ballastwiderstände wurde die Belastung beider Stabilisatoren immer auf 90 bis 100 % der maximalen Belastbarkeit gehalten, so daß extrem stabile Bedingungen erreicht werden konnten. Ein Klimagerät sorgte für eine konstante Temperatur von 24° C $\pm$ 1° C, zwei Luftentfeuchter für niedrige Luftfeuchtigkeit zur Vermeidung von Kriechströmen auf den Isolatoren. Das Schwingkondensator-Elektrometer war während der Dauer der Messungen (10 Monate) ständig in Betrieb. Die übrige Apparatur wurde 2 1/2 bis 3 Stunden vor Beginn eines Meßprogramms eingeschaltet, damit alle elektronischen Geräte, vor allem aber der Schalttisch und der Hochspannungstransformator der Röntgenanlage thermische Konstanz erreichten.

III. Messungen und Auswertung der Ergebnisse

a) Aufnahme der Strom-Spannungs-Kurven

Die Messungen bestanden in der Aufnahme von Strom-Spannungs-Kurven bei einer Vielzahl von Drucken von 1 bis 200 Atm an den Gasen O_2, "Luft", N_2, Ar und He. Der Plattenabstand wurde im Verlauf der Messungen in drei Stufen (0,5 cm; 1,0 cm und 1,92 cm) geändert, wobei keine systematische Änderung der Meßergebnisse festzustellen war. Hieraus folgt, daß Wandeffekte, die bei vielen älteren Untersuchungen die Ergebnisse verfälschten (Abs. V. c), nicht in wesentlichem Maße vorhanden sein konnten.

Die Messungen bei niedrigen Drucken dienten zur Festlegung der Geraden $i_S = C \cdot \rho$ (Gl. 3). Da hier keine bevorzugte Rekombination vorlag, konnte Sättigung und ein linearer Anstieg von i_S über ρ festgestellt werden.

Im einzelnen ging die Messung folgendermaßen vonstatten: Nach dem Auspumpen der Apparatur auf einen Druck von 10^{-2} Torr wurde die Apparatur mit dem Meßgas ca. 1 Minute " gespült" , dann auf einen Druck, der etwas höher als der Meßdruck war, gebracht. Schließlich konnte mit dem in Abs. III. b erwähnten Feinablaß-Ventil der gewünschte Meßdruck genau eingestellt werden. Die Röntgenstrahlung der Röhre wurde nun freigegeben und Hochspannung an die Platten des Kondensators gelegt. Verwendung fanden im allgemeinen Spannungsschritte von ca. 1 kV im Bereich von 3 kV bis 19 kV, unterhalb von 3 kV waren die Schritte feiner gestuft. Bei niedrigen Drucken waren je nach dem Einsatzpunkt der Ionenmultiplikation die angelegten Spannungen entsprechend geringer. Da die bei Anlegen negativer bzw. positiver Spannungen gemessenen positiven bzw. negativen Ionenströme keinen systematischen Gang zeigten, wurden die Ergebnisse gemittelt.

Die Ausmessung einer solchen Strom-Spannungs-Kurve dauerte ca. 15 bis 20 Minuten. Insgesamt ergaben sich ca. 1500 Strom-Spannungs-Kurven und mehr als 150ooo Meßpunkte.

b) Korrektur auf Schwächung der Röntgenstrahlung

Mit steigender Gasdichte wurde die Röntgenstrahlung auf ihrem Wege vom Eintrittsfenster zum Kondensator in zunehmendem Maße geschwächt, so daß die eingestrahlte Energie nicht, wie vorausgesetzt, konstant war. Die gemessenen Ströme mußten also mit einem Korrekturfaktor K_s multipliziert werden, der diese Schwächung berücksichtigt:

$$K_S = e^{+\frac{\mu}{\rho}(\bar{E}) \cdot \rho \cdot x} \qquad (6)$$

mit $\frac{\mu}{\rho}(\bar{E})$ = Massenschwächungskoeffizient bei der mittleren Energie $\bar{E}$

x = Entfernung Strahleneintrittsfenster-Kammermitte (3,6 cm).

Für die Bestimmung des Schwächungskoeffizienten mußte die mittlere Energie $\bar{E}$ bekannt sein. Hierzu wurden die Spektren nach der Kulenkampff-Formel berechnet

$$I_E = C\,(U - U_{max})\, e^{-\left(\frac{\mu}{\rho}\right)_{Al} \cdot \rho_{Al} \cdot d_{Al}} . \qquad (7)$$

Dabei sind

I_E = Bestrahlungsstärke bei der Energie E und

U_{max} = maximale Röhrenspannung.

Der Exponentialfaktor beschreibt die Schwächung durch Eigenfilterung der Röhre und durch das Strahleneintrittsfenster (0,2 cm + 0,6 cm Al). Graphische Integration ergibt die mittlere Energie $\bar{E}$. Für die mittleren Schwächungskoeffizienten wurden interpolierte Werte aus [38] verwendet.

Bei Helium war $K_S \approx 1{,}00$; für Argon ließ sich die Schwächungskorrektur nicht durchführen, wie noch erörtert werden wird.

In Tabelle I sind in Spalte 1 die eingestellten Röhrenspannungen U_{max}, in Spalte 2 die berechneten mittleren Energien $\bar{E}$ und in den Spalten 3, 4 und 5 die daraus gewonnenen

mittleren Massenschwächungskoeffizienten für O_2, " Luft" und N_2 zusammengestellt.

Tabelle I

U_{max}[kV]	$\bar{E}$ [keV]	$\left(\frac{\mu}{\rho}\right)$ $\frac{cm^2}{g}$		
		O_2	Luft	N_2
50	38	0,268	0,253	0,235
75	48	0,217	0,210	0,197
120	66	0,181	0,177	0,173

Eine rechnerische Kontrolle bestätigte, daß eine Änderung des Spektrums auf dem Wege der Röntgenstrahlen durch den Kondensator auch beim höchsten Sauerstoffdruck und 50 kV-Strahlung (höchster Schwächungskoeffizient der Tabelle I) vernachlässigt werden konnte ($\Delta \bar{E}/\bar{E} < \pm$ 1 %). Gleichzeitig war hiermit die Benutzung eines mittleren Schwächungsweges vom Strahleneintrittsfenster bis zur Kammermitte gerechtfertigt. Die größte Korrektur betrug bei Sauerstoff (198 Atm, ρ = 0,307 g/cm^3, 50 kV-Röntgenstrahlung) $K_s = e^{+\ 0,268\ \cdot\ 0,307\ \cdot\ 3,6} = 1,334$.

Die Dichte der Gase wurde nach der van der Waals-Gleichung mit Konstanten aus [13] berechnet. Bei den höchsten Drucken ergeben sich Abweichungen vom idealen Gasgesetz von ca. 20 %.

In Abb. 3 bis 5 sind an einigen Beispielen hinsichtlich der Schwächung korrigierte Strom-Spannungs-Kurven für die Gase O_2, " Luft" und N_2 dargestellt. Es handelt sich um

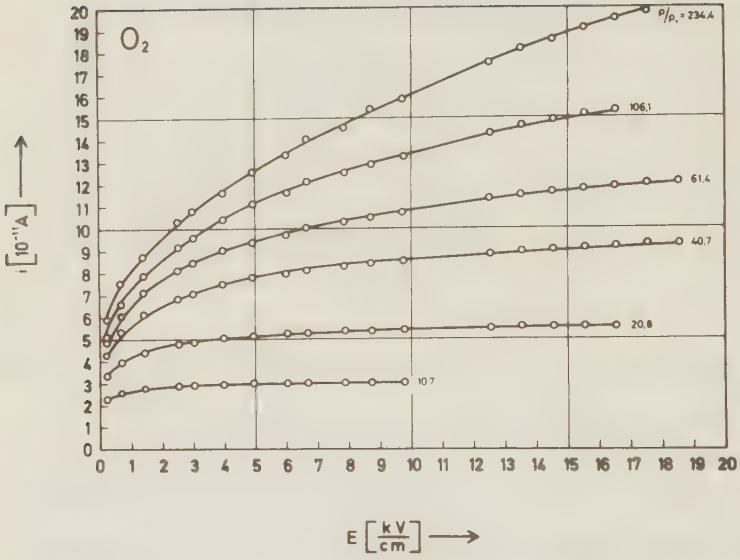

Abb. 3: Beispiel für hinsichtlich Schwächung korrigierte Strom-Spannungs-Kurven (O_2, 50 kV, 30 mA) Parameter ρ/ρ_1.

Meßergebnisse, die bei 50 kV Röhrenspannung, 30 mA Röhrenstrom und 1 cm Plattenabstand gewonnen wurden. Parameter der Auftragung ist die relative Dichte ρ/ρ_1.

Man erkennt deutlich, daß bei höheren relativen Dichten auch bei Feldstärken von ca. 20 kV/cm keine Sättigung erreicht werden konnte; hierin macht sich der starke Einfluß

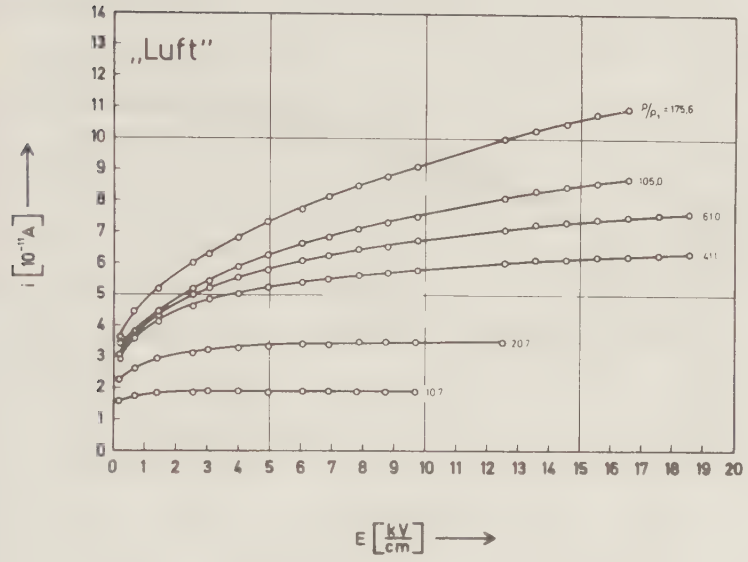

Abb. 4: Beispiel für hinsichtlich Schwächung korrigierte Strom-Spannungs-Kurven (" Luft" , 50 kV, 30 mA) Parameter ρ/ρ_1.

der Anfangsrekombination bemerkbar. Insbesondere erkennt man aber auch das unterschiedliche Verhalten der gezeigten Gase. Bei Stickstoff wird eine Sättigung noch bei einem Druck von ca. 40 Atm, bei " Luft" nur noch bei ca. 20 Atm und bei Sauerstoff gar bei ca. 10 Atm annähernd erreicht.

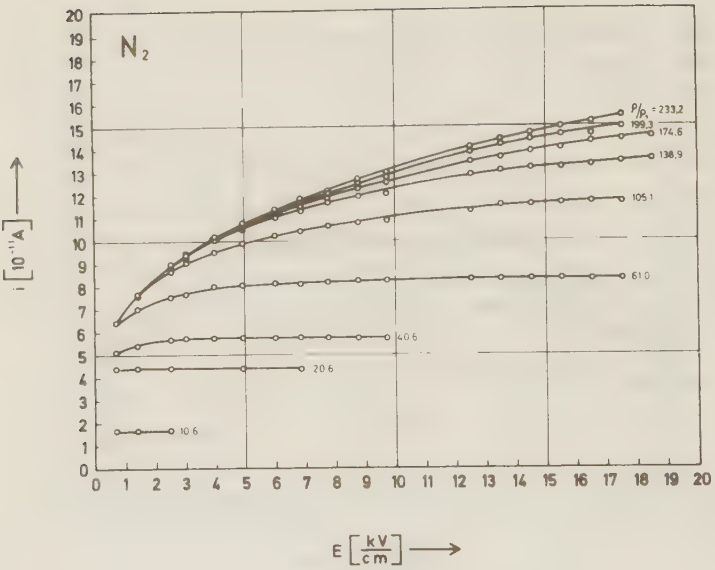

Abb. 5: Beispiel für hinsichtlich Schwächung korrigierte Strom-Spannungs-Kurven (N_2, 50 kV, 30 mA) Parameter p/p_1.

Es lohnt sich nicht, entsprechende Kurven für die Edelgase Argon und Helium zu zeigen, da sie auch bei den höchsten Drucken normale Sättigung erreichten. Hieraus kann schon gefolgert werden, daß Anfangs- und bevorzugte Rekombination keine starken Effekte darstellen können.

c) Die Jaffé-Theorie der Anfangsrekombination

Bevor in Abs. IV. d die Korrektur bezüglich der Anfangsrekombination durchgeführt wird, sollen zunächst die Grundzüge der verwendeten Theorie dargestellt werden.

Aufgrund von Messungen der Ionisation in Flüssigkeiten bei Bestrahlung mit α-Teilchen hat Jaffé [26]-[28] eine Theorie entwickelt, die auch in guter Näherung die Beschreibung der Strom-Spannungs-Kurven bei dichter Ionisation in komprimierten Gasen erlaubt. Er geht davon aus, daß sich die gebildeten Ionen zunächst in Kolonnen (Ionenschläuchen) entlang der Bahnen der ionisierenden Teilchen befinden und sowohl durch Diffusion als auch durch das von außen angelegte Feld auseinander getrieben werden, wobei sie gleichzeitig rekombinieren. Unter der Annahme, daß das elektrische Feld E in x-Richtung verläuft und Diffusion mit der Diffusions-Konstante D nur radial von der Kolonne weg (x- und y-Richtung) stattfindet, wird das zu lösende Problem der Abnahme der positiven bzw. negativen Ionendichten mit der Zeit durch die folgenden beiden Differentialgleichungen dargestellt.

$$\frac{dn_{\pm}}{dt} = D\left(\frac{d^2n_{\pm}}{dx^2} + \frac{d^2n_{\pm}}{dy^2}\right) \mp u\,E\,\frac{dn_{\pm}}{dx} - \alpha\,n_{+}\,n_{-}, \qquad (8)$$

mit u = Beweglichkeit der Ionen.

Hierbei beschreibt der erste Term die Verbreiterung der Kolonnen durch Diffusion unter der Voraussetzung gleichen Diffusionsverhaltens von positiven und negativen Ionen.

Der zweite Term gibt den Einfluß des elektrischen Feldes an, wobei angenommen wird, daß die Anwesenheit der Ionen die Homogenität des elektrischen Feldes nicht stört. Der dritte Term schließlich liefert die Abnahme der in gleicher Anzahldichte $n_+ = n_- = n$ vorhandenen Ionendichten durch Rekombination. Hierbei wird angesetzt, daß in diesen Mikrobereichen Volumenrekombination nach Gl. (5) mit einem räumlich und zeitlich konstanten Rekombinationskoeffizienten α vorliegt.

" Da die Lösung dieser Differentialgleichungen keine übersichtlichen Resultate liefert" , gibt Jaffé zunächst eine Lösung der Gleichungen ohne den dritten Term an, d.h. er betrachtet das Problem unter Vernachlässigung der Rekombination. Es ergibt sich die partikuläre Lösung

$$n_{\pm} = \frac{N}{\pi(4Dt+b^2)} \, e^{-\frac{(x \pm uE)^2 + y^2}{4Dt + b^2}} \, . \qquad (9)$$

Sie stellt zwei sich allmählich verbreiternde Kolonnen dar, die sich mit der Relativgeschwindigkeit 2 u E voneinander entfernen. Dabei ist die Anfangsverteilung der Ionen

$$n_o' = \frac{N}{\pi . b^2} \, e^{-\frac{r^2}{b^2}} \qquad (10)$$

N = lineare Ionendichte in der Kolonne in Ionenpaare/cm.

Der Kolonnenparameter b ist mit dem mittleren Abstand der Ionen von der Kolonnenachse verknüpft durch

$$\overline{r_o} = b\sqrt{\frac{\pi}{4}} \, . \qquad (11)$$

Nun wird die Lösung (9) in Gl. (8) eingesetzt und erneut integriert. Nach mehrmaligen Umformungen ernält Jaffé für den gemessenen Strom bei der Feldstärke E

$$\frac{1}{i(E)} = \frac{1}{i_J} + \frac{\alpha N_o}{8.\pi.D.i_J} \cdot f(x) \qquad (12)$$

mit

$$x = \left(\frac{b.u.\sin\varphi.E}{2 \cdot D}\right)^2 \qquad \text{mit } \varphi = \text{Winkel zwischen Feld und Kolonne} \qquad (13)$$

und

$$f(x) = e^x \frac{i\pi}{2} \cdot H_o^{(1)}(ix). \qquad (14)$$

$H_o^{(1)}$ ist die erste Hankel'sche Funktion nullter Ordnung. Für sin φ ist bei isotroper Verteilung der Sekundärelektronen-Bahnen, die man bei Röntgenstrahlen wohl annehmen darf, der Mittelwert $\overline{\sin\varphi} = \frac{\pi}{4}$ für den Winkel zwischen Feld und Kolonnen anzusetzen [26].

Es sei noch einmal zusammengefaßt: Jaffé erhält aus der Annahme von homogener Verteilung der Ionen in Richtung der Bahn des ionisierenden Teilchens, einer Gaußverteilung der Ionen in den Richtungen senkrecht zur Bahn des ionisierenden Teilchens und der Annahme gleichen Diffusionsverhaltens der positiven und negativen Ionen eine mathematische Beschreibung für die Strom-Spannungs-Kurven bei Anfangsrekombination.

Eine Verfeinerung der Theorie von Jaffé wurde von Lea angegeben [33], [36]. Nach Lea erfolgt die Diffusion wegen

förmigen Bereichen (" Cluster") längs der Sekundärelektronen-Bahnen zunächst nach allen Richtungen, bis die Verschmelzung dieser Cluster zu einer Kolonne eintritt und der weitere Prozeß nach der Jaffé-Theorie verläuft. Diesen Vorgang hat Lea auf eine der Jaffé-Theorie ähnliche Weise behandelt und gelangt zu noch verwickelteren Formeln, in die allerdings physikalisch richtige Konstanten eingesetzt werden. Insbesondere handelt es sich hier um N_o, die lineare Ionendichte in der Kolonne und b, den Kolonnenparameter, die bei einer Benutzung des Jaffé-Verfahrens für dünn ionisierende Teilchen weitgehend ihren physikalischen Sinn verlieren, weil sie aus einer groben Mittelung stammen. Die Theorie führt aber, wie Lea schließlich selbst zugibt, zu keinem anderen Sättigungsstrom, wenn die elektrischen Felder hoch genug gewählt werden.

Weil in dieser Arbeit nur Interesse an $i_{Jaffé}$ $(= i_{Lea})$ vorlag, und die Interpretation der erwähnten Konstanten als sekundär erachtet wurde, soll die Kritik von Lea an der Jaffé-Theorie hier nicht ausführlicher dargestellt werden.

Da die Jaffé-Theorie die Volumenrekombination (völliges Auseinanderdiffundieren der Ionenkolonnen) nicht beschreibt, müssen bei ihrer Anwendung die Feldstärken so groß gewählt werden, daß die Volumenrekombination mit Sicherheit unterbunden ist. Nachdrücklich hingewiesen werden muß ferner auf die Tatsache, daß die bevorzugte Rekombination von der Jaffé-Theorie nicht erfaßt wird. Aus diesem Grunde wurde in Gl. (12) der Index " J" = " Jaffé" am Anfangsrekombinations-

Sättigungsstrom angebracht, um anzudeuten, daß auch dieser Strom unter bestimmten Bedingungen noch nicht der wahre Sättigungsstrom zu sein braucht, dann nämlich, wenn bevorzugte Rekombination vorliegt. Die Funktion f(x) in Gl. (14) ist bei Zanstra [47] graphisch tabelliert, so daß man zu einem handlichen Auswerteverfahren gelangt. Auf dieses soll im folgenden eingegangen werden.

d) Das Jaffé-Zanstra-Verfahren

Bei einer Auftragung der Kehrwerte der gemessenen Ströme 1/i(E) über der Jaffé-Funktion f(x) verlangt die Theorie nach Gl. (12), daß sich Geraden ergeben mit einem Ordinatenabschnitt $1/i_J$ für f(x) = 0. f(x) ist eine verwickelte Funktion von E, sie fällt mit steigender Feldstärke und verläuft für sehr hohe Feldstärken wie 1/E, d.h. eine Auftragung von 1/i gegen f(x) und Verlängerung der Geraden bis f(x) = 0 bedeutet eine Extrapolation nach $E = \infty$.

Der einzige Parameter der Theorie, der angepaßt werden muß, damit sich die geforderten Geraden ergeben, ist der Kolonnenparameter b (Gl. (13)). Er wurde bei einem einzigen Druck für jedes Gas angepaßt. Die Theorie verlangt nun, daß dieses b bei allen anderen Drucken nur noch nach der Beziehung $b_2 = b_1 \cdot \rho_1/\rho_2$ (b_i = Kolonnenparameter beim Druck p_i) reduziert werden darf und dann in Gl. (13) eingesetzt für die 1/i über f(x)-Auftragungen Geraden liefern muß. Diese Bedingung war sehr gut erfüllt, wenn man für b_1 (b bei 1 Atm) folgende Werte wählte:

Tabelle II

Gas	b_1 cm
O_2	$3{,}6 \cdot 10^{-4}$
" Luft"	$3{,}6 \cdot 10^{-4}$
N_2	$9{,}0 \cdot 10^{-3}$

Für Gl. (13) ergab sich mit $\frac{u}{D} = \frac{e}{kT} = 39{,}1\ V^{-1}$ bei $T = 24^{\circ}\ C = 297{,}2^{\circ}\ K$ und $\sin\varphi = \frac{\pi}{4}$:

$$x = 2{,}36 \cdot 10^2 \cdot b^2(\rho) \cdot E^2 \ \frac{cm^2}{V^2} \cdot \qquad (15)$$

In Abb. 6 bis 8 sind einige Beispiele für derartige Jaffé-Transformationen von gemessenen und hinsichtlich Schwächung korrigierten Strom-Spannungs-Kurven aufgetragen. Man erkennt jeweils Scharen von parallelen Geraden mit dem Parameter ρ/ρ_1, die gestrichelt zum Extrapolationswert $1/i_J$ auf der Ordinate geführt wurden. Die Parallelität der Geraden wird von der Theorie verlangt. Nach Gl. (12) ist die Steigung

$$S = \frac{\alpha(\frac{1}{\rho}) \cdot N_o(\rho)}{8.\pi.D(1/\rho) \cdot i_J(\rho)} \qquad (16)$$

also bezüglich ρ eine Konstante. Bei kleinen Dichten und hohen Feldstärken (kleine $f(x)$) erkennt man insbesondere bei " Luft" und Sauerstoff systematische Abweichungen von den Geraden zu kleineren $1/i$, d.h. zu höheren i. Als Grund wird einsetzende Stoßionisation vermutet.

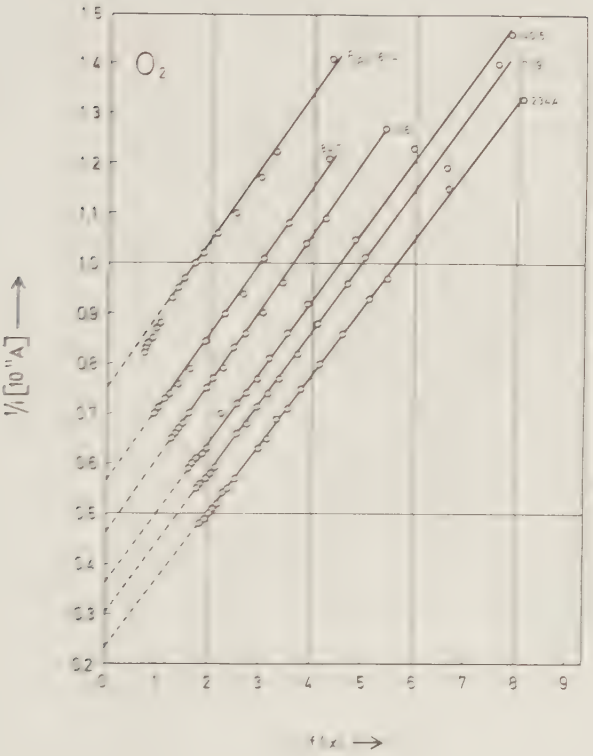

Abb. 6: Beispiel für 1/i über f(x) nach der Theorie von Jaffé (O_2, 50 kV, 30 mA).

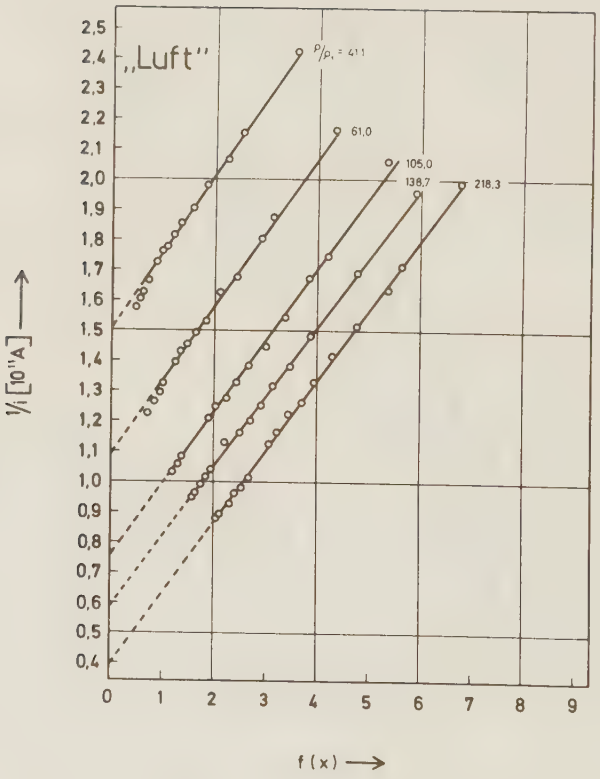

Abb. 7: Beispiel für 1/i über f(z) nach der Theorie von Jaffé (" Luft" , 50 kV, 30 mA).

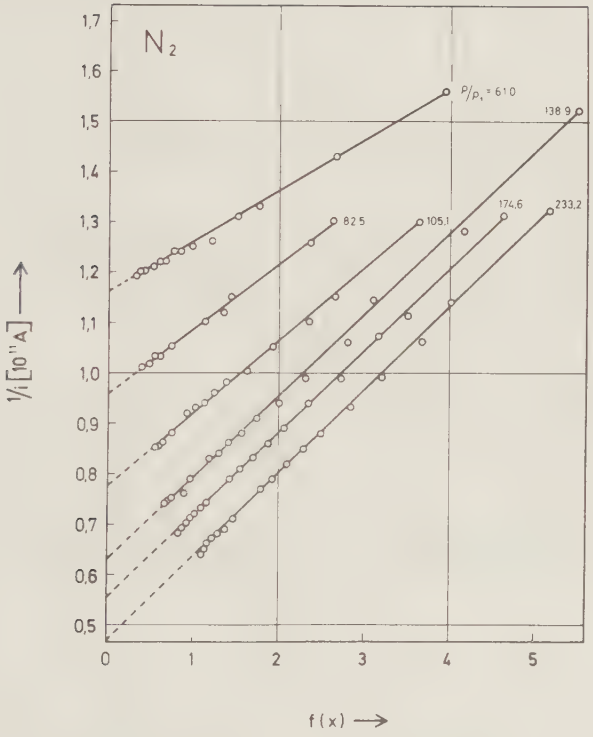

Abb. 8: Beispiel für 1/i über f(z) nach der Theorie von Jaffé (N_2, 50 kV, 30 mA).

e) Auswertung

Die aus den Abb. 6-8 gewonnenen " Sättigungsströme" i_J hinsichtlich Anfangsrekombination wurden in den nun folgenden Abb. 9-11 als normierte Werte i_J/i_1 (i_1 = Strom bei 1 Atm) jeweils für die Gase O_2, " Luft" und N_2 aufgetragen. Hierbei stellte sich heraus, daß die Ergebnisse, die bei

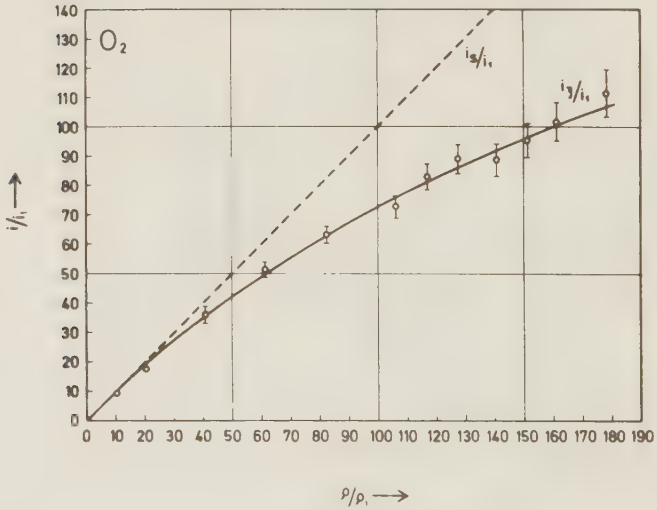

Abb. 9: Auftragung der normierten Extrapolationsströme i_J/i_1 über der relativen Dichte ρ/ρ_1 (alle Messungen an O_2)

verschiedenen Röntgenenergien und Bestrahlungsstärken gewonnen waren, innerhalb der Streubreite von Messungen bei

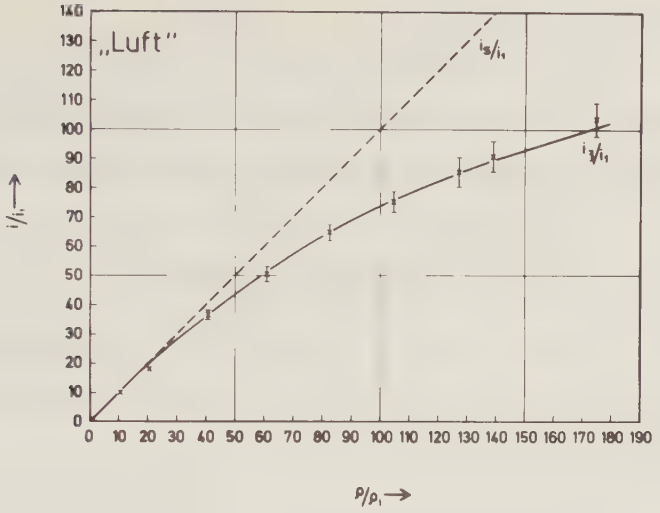

Abb. 10: Auftragung der normierten Extrapolationsströme i_J/i_1 über der relativen Dichte ρ/ρ_1 (alle Messungen an " Luft").

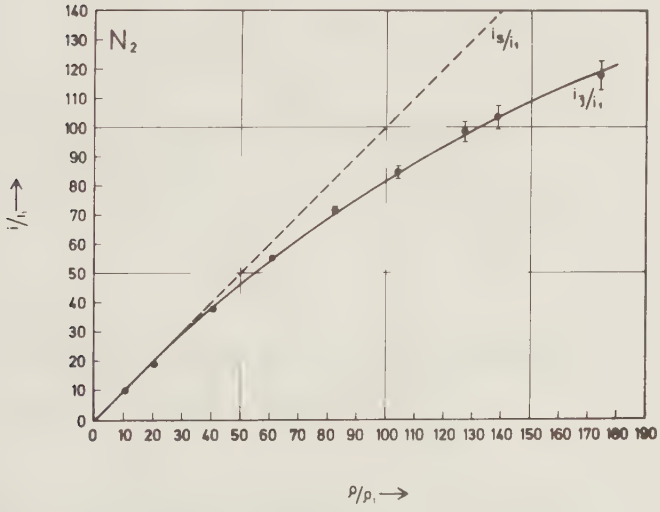

Abb. 11: Auftragung der normierten Extrapolationsströme i_J/i_1 über der relativen Dichte ρ/ρ_1 (alle Messungen an N_2).

einer einzigen Röntgenenergie und Bestrahlungsstärke lagen und keine systematischen Abweichungen zeigten. Aus diesem Grunde wurden alle Ergebnisse, die bei den verschiedenen Plattenabständen, Röntgenenergien und Bestrahlungsstärken, aber bei derselben Gasdichte gewonnen waren, zusammengefaßt. Bei niedrigen Drucken konnte die Proportionalität des Sättigungsstromes zur Dichte kontrolliert werden, wie an einem Beispiel in Abb. 12 gezeigt wird. Gleichzeitig konnte auf diese Weise eine genauere Festlegung des Bezugsstromes i_1 erreicht werden.

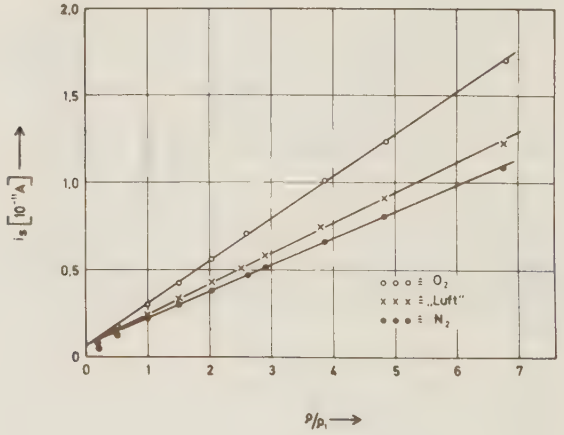

Abb. 12: Beispiel für die Proportionalität zwischen i_S und ρ/ρ_1 bei kleinen Dichten (120 kV, 10 mA).

In der Auftragung i/i_1 über ρ/ρ_1, Abb. 9 - 11, ergibt die Voraussetzung für den proportionalen Anstieg von i_S mit der Dichte (Gl. (13)) Geraden mit dem Anstieg 1, die

in den Abbildungen gestrichelt eingezeichnet sind. Die bevorzugte Rekombination macht sich durch Abweichungen von diesen bemerkbar. Diese Abweichungen durch bevorzugte Rekombination sind in den Abbildungen deutlich abzulesen. Sie betragen bei $p/p_1 \approx 200$ bei Sauerstoff und " Luft" ungefähr 45 % und in Stickstoff ca. 35 %.

V. Ergebnisse

a) Darstellung der Ergebnisse

Das Ergebnis für Helium ist an einem Beispiel für eine Meßreihe bei U_A = 50 kV, i_A = 30 mA in Abb. 13 dargestellt.

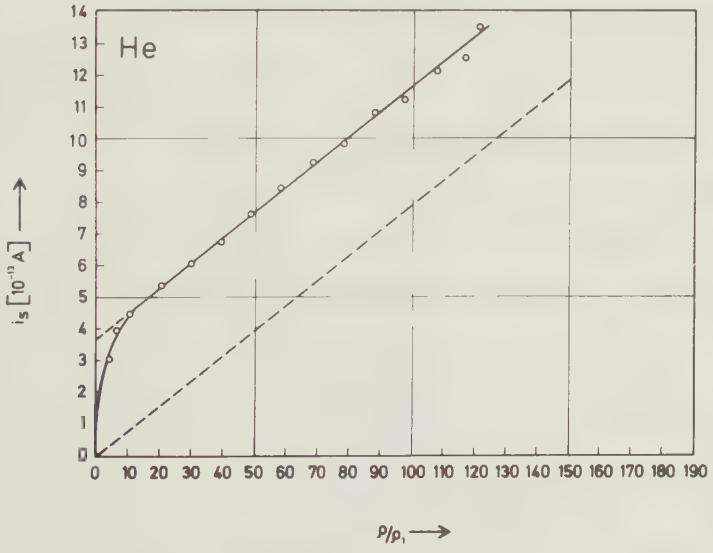

Abb. 13: Endergebnis am Helium. i_S über p/p_1. 50 kV, 30 mA. (Gestrichelte Gerade nach Abzug des Wandeffektes).

Da im Helium bei allen Drucken Sättigung erreicht wurde, konnten hier die Sättigungsströme i_S gegen die relative Dichte aufgetragen werden. Für hohe Dichten ergibt sich ein linearer Anstieg für die Auftragung von i_S über ρ/ρ_1, aus dem man ablesen kann, daß keine bevorzugte Rekombination vorgelegen hat. Leider verläuft der gerade Teil der Kurve bei Verlängerung nicht durch den Koordinatenursprung. Hier war - abgesehen von niedrigen Dichten - dem gemessenen Strom ein konstanter Strom überlagert, der aus einer zusätzlichen Ionisation durch unerwünschte Sekundärelektronen hoher Energie stammt (Wandeffekt; vermutet wird, daß die Dessauer-Schicht für Helium nicht ausreichte und zurückstrahlte). Die Kammer war also für Heliummessungen zu klein konstruiert. Trotzdem ist das Ergebnis der Messungen am Helium eindeutig: Es gibt wegen des linearen Anstiegs keine bevorzugte Rekombination.

Leider läßt sich das Ergebnis am Argon nicht in derselben Deutlichkeit durch eine Gerade i_S über ρ darstellen. Argon schwächt die Röntgenstrahlen so stark, daß die gemessenen Sättigungsströme nicht glaubhaft korrigiert werden können. In Abb. 14 ist an einem Beispiel (U_A = 50 kV, i_A = 10 mA) gezeigt, wie der gemessene Sättigungsstrom mit der relativen Dichte verläuft. Man erkennt, daß die Kurve bei $\rho/\rho_1 \approx 110$ ein Maximum hat und zu höheren Dichten abfällt. Hier verhindert also die Schwächung den linearen Anstieg der Sättigungsströme mit der Dichte in solchem Maße, daß der gemessene Strom bei $\rho/\rho_1 = 200$ nur ca. 15 % des bei linearem Anstieg erwarteten Stromes (in Abb. 14

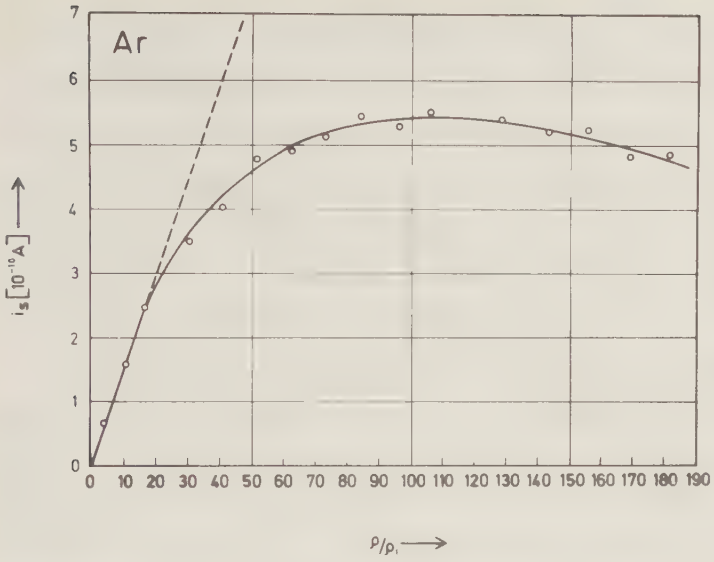

Abb. 14: Argon. Gemessene Sättigungsströme (ohne Schwächungskorrektur) über der relativen Dichte ρ/ρ_1.

gestrichelte Kurve) beträgt. Man kann also beim Argon auf das Fehlen von bevorzugter Rekombination nur aus der Tatsache schließen, daß bei allen Dichten ein echter Sättigungsstrom gemessen wurde. Dieses Ergebnis wird auch durch Messungen am flüssigen Argon [46] bestätigt.

In Abb. 15 sind schließlich die aus Abb. 9 - 11 gewonnenen Rekombinationswahrscheinlichkeiten für bevorzugte Rekombination ($\varphi_{b.R.} = 1 - i_J/i_S$) über der relativen Dichte aufgetragen. Das erstaunliche Ergebnis ist: " Luft" und Sauerstoff zeigen den gleichen Effekt! Hierfür sind zwei

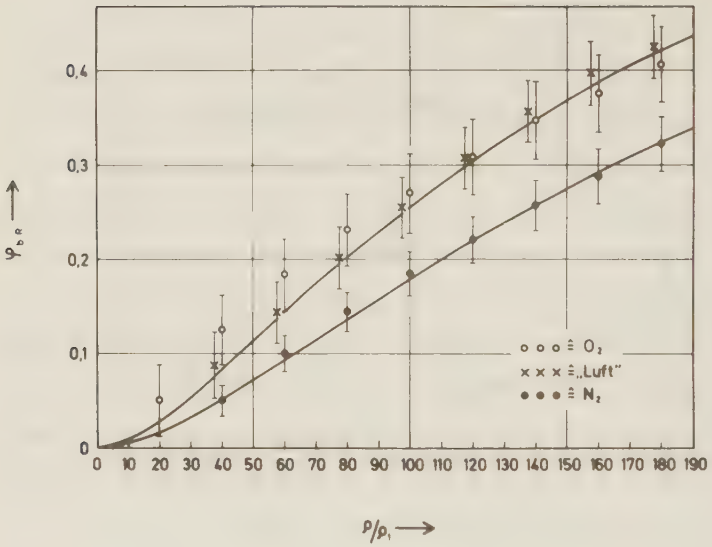

Abb. 15: Endergebnis für O_2, " Luft" und N_2.

Begründungen möglich: Einerseits könnte der Sauerstoffgehalt der " Luft" schon ausreichen, um eine so schnelle Anlagerung des Elektrons und damit einen so hohen Anteil von bevorzugter Rekombination zu bewirken, daß in reinem O_2 kein zusätzlicher Effekt mehr möglich ist. Andererseits könnte die Anlagerung für die bevorzugte Rekombination eine unerwartet geringe Rolle spielen. In diesem Sinne wäre auch die verhältnismäßig hohe bevorzugte Rekombination im Stickstoff, der keine Anlagerung zeigt, deutbar. Die Energieabgabe der " Subionisations-Elektronen" auf ihrem Wege vom Mutterion weg scheint auch ohne Anlagerung auf so kurzen Wegen zu erfolgen, daß sie dem Mutterion bei hohen

Dichten gar nicht mehr entrinnen können. Offenbar werden also für die bei zweiatomigen Molekülen mögliche Anregung von Schwingungen und Rotationen hohe relative Energieanteile der niederenergetischen Elektronen verbraucht. Weiterhin bleibt aber auch das Fehlen von bevorzugter Rekombination in Helium und Argon erklärt. Zur Thermalisierung sind in diesen Edelgasen nur elastische Stöße mit geringer Energieabgabe möglich.

Es sei betont, daß beim Stickstoff der hohe Prozentsatz von bevorzugter Rekombination nicht durch Anlagerungseffekte an Spuren von Sauerstoff bzw. Wasserdampf (" Dreck") zustandekommt. Da die Reinheit vom Hersteller garantiert wird (O_2 < 5 ppm, H_2O < 1,5 ppm), könnte man zwar noch Verunreinigung durch Gasabgabe von den Kammerwänden vermuten; diese Vermutung wird aber durch die Ergebnisse am Helium widerlegt. Auch hier hätte dann eine entsprechende Verunreinigung eintreten müssen und kein linearer Anstieg von i_S über ρ gefunden werden dürfen.

b) Fehlerbetrachtung

Für eine Abschätzung des Fehlers der Endergebnisse sei zunächst der systematische der Schwächungskorrektur genannt. Bei der Beurteilung des Fehlers der Schwächungskorrektur $K_s = e^{+\frac{\mu}{\rho}(\bar{E}) \cdot \rho \cdot x}$ wurde geschätzt, daß die mittlere Energie nur auf etwa $\pm$ 10 % genau bekannt war. Hieraus ergibt sich ein von der Dichte der mittleren Energie und der Gasart abhängiger Fehler, der bei Bestrahlung von Sauerstoff 190 Atm durch 50 kV Röntgenstrahlung seinen höchsten Wert mit $\pm$ 5 % hatte.

Bei den statistischen Schwankungen hatten die langzeitigen Schwankungen der Bestrahlungsstärke offensichtlich einen großen Einfluß auf das Endergebnis. Eine Änderung der Röhren-Anoden-Spannung von 50 kV um ± 0,5 % führte zu einer Änderung von i_J um ± 5 %. Während der einzelne Meßpunkt der i—>E-Kurven mit einem mittleren Fehler < 0,5 % zu versehen war, hatte der einzelne extrapolierte Jaffé-Strom i_J je nach Gas eine Schwankung von ± 2,5 % für Sauerstoff, ± 1,5 % für " Luft" und ± 1,5 % für Stickstoff. Der Wert von i_1, der aus der Schwankung der Geraden für kleine Dichten wie in Bild 12 ermittelt wurde, ist auch mit ± 2,5 % anzugeben. Insgesamt ergab sich bei der Mittelung von i_J/i_1 aus allen Messungen für Bild 15 als mittlerer Fehler durch statistische Schwankungen

$$\frac{\triangle i_J/i_1}{i_J/i_1} \approx \pm 3{,}5\ \% \text{ für } O_2;$$

$$\frac{\triangle i_J/i_1}{i_J/i_1} \approx \pm 2{,}5\ \% \text{ für " Luft" und}$$

$$\frac{\triangle i_J/i_1}{i_J/i_1} \approx \pm 1{,}0\ \% \text{ für } N_2.$$

Dieser wurde zusammen mit dem für Dichte, Gasart und Röntgenenergie variierenden systematischen Fehler in die Abb. 9 - 11 eingetragen und auch in die Endergebnisse der Abb. 15 überführt.

c) Ergebnisse anderer Autoren

Leider ist ein Vergleich mit den Ergebnissen anderer Autoren nicht möglich. In neuerer Zeit gibt es nur Arbeiten, die bei mittleren Drucken (ca. 10 Atm) ausgeführt wurden [14], [42], [43], [44]. Hier war keine ausgeprägte bevorzugte Rekombination zu erwarten. Die Jaffé-Theorie, die auch bei diesen Arbeiten herangezogen wurde, mußte also zu einem echten Sättigungsstrom führen.

Die Arbeiten an höher komprimierten Gasen sind im wesentlichen in den 30er Jahren entstanden [2], [4]-[11], [18], [35]. Der Anlaß zu diesen Arbeiten waren in fast allen Fällen Probleme, die mit der Untersuchung der Ionisation von Höhenstrahlung auftraten. Wegen der geringen spezifischen Ionisation dieser Strahlung sollte der meßbare Effekt durch Erhöhung der Gasdichte vergrößert werden. Hierzu mußte natürlich das Rekombinationsverhalten bei Druck bekannt sein. Es lohnt sich nicht, diese Arbeiten ausführlicher zu besprechen, da die meßtechnischen Möglichkeiten weit von den heutigen entfernt waren. Offenbar war es der Industrie auch noch nicht möglich, Gase extremer Reinheit in großen Mengen herzustellen. In fast allen Fällen lag zudem ein sehr starker Wandeffekt (Höhenstrahlung !) vor. Daher ist es nicht möglich, aus den Ergebnissen den Anteil der bevorzugten Rekombination, die sicherlich vorgelegen hat, abzuschätzen und mit den hier gebrachten Ergebnissen zu vergleichen.

Zur Vollständigkeit müssen noch die Untersuchungen bei Bestrahlung von dielektrischen Flüssigkeiten erwähnt werden. Hier wurde in guter Übereinstimmung aller Autoren eine sehr ausgeprägte bevorzugte Rekombination gefunden [1], [19], [25], [30], [41], [45]. Wegen seiner geringen Eigenleitfähigkeit ist vor allem das n-Hexan häufig untersucht worden. Da von fast allen Autoren mit hochenergetischer γ-Strahlung ($E \approx 1{,}5$ MeV) gearbeitet wurde, konnte eine Theorie von Onsager [40], welche die Entkommwahrscheinlichkeit von isolierten Ionenpaaren beschreibt, angewendet werden. Es ergibt sich, daß in Hexan das Elektron im Mittel im Abstand $R \approx 100$ Å thermalisiert ist, und daß ohne elektrisches Feld nur 3 % der Elektronen überhaupt der Coulomb-Anziehungskraft entkommen. Die Messungen an Flüssigkeiten leiden allerdings unter der Notwendigkeit der Bestimmung der eingestrahlten Energie. Der Fehler der Energiemessung, der unmittelbar in das Endergebnis eingeht, betrug in einigen Fällen $\pm$ 30 %. Dieser Fehler konnte bei der vorliegenden Untersuchung der bevorzugten Rekombination in Gasen durch Variation der Gasdichte bei konstant gehaltener eingestrahlter Energie ausgeschaltet werden.

d) Vergleich der Ergebnisse mit der Theorie

Es gibt nur zwei theoretische Ansätze, die sich mit der bevorzugten Rekombination so weitgehend befaßt haben, daß man sie hier erwähnen muß. Dieses sind die Theorie von Onsager [40] und Rechnungen von ElKomoss und Magee [17]

zur Entkommwahrscheinlichkeit von Elektronen aus der Coulombkugel.

Die Onsager-Theorie betrachtet isolierte Ionenpaare, bei denen sich das negative Ion im Abstand $< R_K$, also im Coulombanziehungsbereich befindet, und berechnet die Entkommwahrscheinlichkeit bei Anlegen eines elektrischen Feldes zu

$$\varphi_p(E) = \varphi_{po} \cdot \varphi(E) ,$$

wobei φ_{po} die Entkommwahrscheinlichkeit ohne elektrisches Feld und $\varphi(E)$ den feldstärkeabhängigen Anteil der Entkommwahrscheinlichkeit darstellen soll. Diese Theorie ist vielfach zur Deutung von Meßergebnissen bei Bestrahlung mit hochenergetischer γ- bzw. Röntgenstrahlung von dielektrischen Flüssigkeiten herangezogen worden und hat in diesen Fällen, in denen offenbar eine dünne Ionisation und damit Übereinstimmung mit dem Modell der isolierten Ionenpaare vorlag [25], [30], befriedigende Ergebnisse geliefert. Die Onsager-Theorie läßt sich anwenden auf Strom-Spannungs-Charakteristiken, bei denen sich einem Anstieg des Stromes mit einer $E^{1/2}$-Funktion bei kleinen Feldstärken ein linearer Anstieg mit der Feldstärke anschließt. Da aber die vorliegenden Messungen keinen linearen Anstieg der Strom-Spannungs-Kurven zeigen, läßt sich die Onsager-Theorie nicht anwenden.

In Abb. 16 sind Rechnungen von Magee mit den ermittelten Daten zur bevorzugten Rekombination verglichen. Hierbei

sind die Ergebnisse aufgetragen als Entkommwahrscheinlichkeit $\varphi_p = i_J/i_S$ über der relativen Dichte. Die durchgezogenen Kurven sind von Magee für kleine Drucke nach einem statistischen Teilchenbild und für höhere Drucke nach einem Diffusionsmodell berechnet worden. Allerdings setzen die

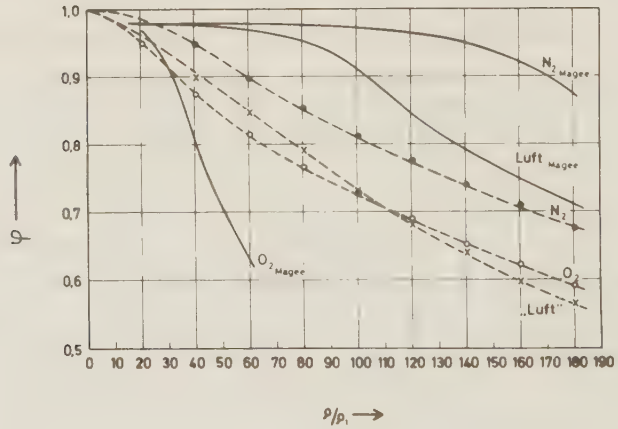

Abb. 16: Vergleich der gemessenen Werte mit theoretischen Ergebnissen von Magee ($\varphi_p = i_J/i_S$ über ρ/ρ_1).

Rechnungen die Abwesenheit eines elektrischen Feldes voraus. Insofern ist es zwar einzusehen, daß die berechnete Entkommwahrscheinlichkeit für O_2 unter der gemessenen Kurve liegt; unverständlich bleibt aber dann, daß Magees' Kurven für Luft und Stickstoff nicht mit dem gemessenen Verlauf übereinstimmen.

Da die Theorien von Onsager und Magee die Messungen nicht beschreiben können, soll im folgenden eine unabhängige Deutung der Kurven versucht werden. Hierzu sei in Erinnerung gerufen, daß die Jaffé-Theorie nur Ionen erfassen kann, die frei diffundieren können. Werden aber die Ionen bei hohen Gasdichten teilweise in solch kleinem Abstand durch das Coulombfeld " eingefroren", daß sie nicht mehr frei beweglich sind, so muß es in den zylinderförmigen Ionenschläuchen einen zentralen Bereich geben, der von der Jaffé-Extrapolation nicht erfaßt wird. Dieser Zylinderbereich habe das Volumen $V_K = \pi \cdot R_K^2/4 \cdot l$, während der gesamte Bereich, in dem Ionen gebildet werden, $V_{ges} = \pi \cdot R^2/4 \cdot l$ sein möge mit $R = R_K + x$. Dann sollte die Entkommwahrscheinlichkeit

$$\varphi = 1 - \frac{V_K}{V_{ges}} = 1 - \frac{R_K^2}{R^2} = 1 - \frac{R_K^2}{(R_K + x)^2}$$

sein. Setzt man nun für $R_K = 400$ Å, so erhält man die ausgezogenen Kurven der Abb. 15. Sie verlaufen in guter Näherung durch die entsprechenden Meßpunkte, wenn man für x bei den verschiedenen Gasen folgende Werte wählt:

$x = 3{,}9 \cdot 10^{-4} \; p_1/p$ [cm] für Sauerstoff und " Luft"

$x = 5{,}5 \cdot 10^{-4} \; p_1/p$ [cm] für Stickstoff.

Die zur Anpassung verwendete Größe x stimmt also in der Größenordnung mit den benutzten Jaffé-Parametern überein.

VI. Zusammenfassung

Es wurden eingehende Untersuchungen zur bevorzugten Rekombination von Ionen im Druckbereich 1 bis 200 Atm in den Gasen Sauerstoff, " Luft" , Stickstoff und Helium sowie orientierende Messungen an Argon unternommen.

Es zeigte sich, daß in den genannten Edelgasen im gesamten Druckbereich keine bevorzugte Rekombination existiert. Dieses Ergebnis wird durch die geringe Wahrscheinlichkeit der Thermalisierung der Elektronen im Feld des Mutterions erklärt, weil die Stöße zur Energieaufzehrung elastisch sind und es keine Anlagerung gibt.

In O_2, " Luft" und N_2 mußte zunächst für die Befreiung der Meßwerte vom Einfluß der Anfangsrekombination das Verfahren von Jaffé-Zanstra angewendet werden, welches zu Extrapolationsströmen führt. Diese Ströme zeigen bei steigender Dichte eine immer stärkere Abweichung vom linearen Anstieg der Ionisation mit der Dichte. Diese Abweichung wird als bevorzugte Rekombination gedeutet und als Endergebnis graphisch dargestellt.

Im Bereich der Variation der mittleren Röntgenenergien zwischen 38 und 66 KeV konnte innerhalb der Fehlerbreite keine Abhängigkeit der bevorzugten Rekombination von der mittleren Energie festgestellt werden.

Es ergibt sich, daß die bevorzugte Rekombination in Sauerstoff und " Luft" etwa den gleichen Verlauf zeigt, während in Stickstoff eine geringere bevorzugte Rekombination herrscht. Dadurch wird nachgewiesen, daß die

Anlagerung nicht, wie immer angenommen wurde, die Hauptvoraussetzung für die bevorzugte Rekombination ist. Den Effekt im Stickstoff kann man auch durch die Thermalisierung der Elektronen im Coulomb-Anziehungsbereich durch die Energieabgabe an Schwingungs- und Rotationszustände erklären.

Es wird versucht, eine plausible Formel für den Verlauf der bevorzugten Rekombination mit der Dichte anzugeben.

Herrn Professor E. Witte und Herrn Professor H.U. Harten habe ich für ihre wohlwollende und aktive Anteilnahme am Fortgang der Untersuchungen, Herrn Dipl-Phys. H. Gottsmann für die stete Bereitschaft zu anregenden Diskussionen und Frau G. Loos und Herrn H. Lott für zuverlässige technische Hilfeleistung, Herrn Lott darüberhinaus für den Bau der Apparatur zu danken.

Nicht zuletzt gilt mein Dank dem Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung, das die Arbeit in großzügiger Weise finanziell unterstützte.

VII. Literatur

[1] Blane, D. et al.: Health Physics 11 (1965), 63

[2] Bowen, I.S.: Phys. Rev. 41 (1932), 24

[3] Bradbury, N.E.: J. Appl. Phys. 11 (1940), 267

[4] Broxon, J.W., G.T. Merideth: Phys. Rev. 54 (1938), 9

[5] — Phys. Rev. 54 (1938), 605

[6] — Phys. Rev. 55 (1939), 883

[7] Clay, J.: Physica 2 (1935), 811

[8] Clay, J., A. van Tijn: Physica 2 (1935), 825

[9] Clay, J., M. Kwieser: Physica 5 (1938), 725

[10] — Physica 7 (1940), 721

[11] Compton, A.H. et al.: Phys. Rev. 38 (1931), 1565

[12] — Phys. Rev. 39 (1932), 873

[13] D'Ans-Lax: Taschenbuch für Chemiker und Physiker, Band I, S. 838. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York 1967.

[14] Ebert, H.-G. et al.: Z. Phys. Chem. 43 (1964), 304

[15] Ebert, H.-G.: Z. Phys. 181 (1964), 181

[16] Ebert, H.-G. et al.: Z. Phys. 181 (1964), 187

[17] ElKomoss, S.G., J.L. Magee: J. chem. Phys. 36 (1962), 256

[18] Erikson, A.: Phys. Rev. 27 (1908), 473

[19] Freeman, G.R.: J. chem. Phys. 39 (1963), 1580

[20] Gottsmann, H.: Diplomarbeit, Göttingen 1966

[21] Gottsmann, H., R. Koepp: Forschungsberichte des BMwF - K 67-47, 1967

[22] Gross, B.: Z. Phys. 78 (1932), 271

[23] Harper, W.R.: Proc.Cambr.Phil.Soc. 28 (1931), 219

[24] — Proc.Cambr.Phil.Soc. 29 (1932/33), 149

[25] Hummel, A., A.O. Allen: J. chem. Phys. 45 (1967), 1602

[26] Jaffé, G.: Ann. Phys. 42 (1913), 303

[27] — Ann. Phys. 1 (5) (1929), 977

[28] — Phys. Z. 30 (1929), 849

[29] — Phys. Rev. 58 (1940), 968

[30] Jahns, A., W. Jacobi: Z. Naturforsch. 21 a (1966), 1400

[31] Jütting, H. et al.: Z. Naturforsch. 20 a (1965), 217

[32] — Z. Naturforsch. 20 a (1965), 213

[33] Kara-Michailova, E., D.E. Lea: Proc.Cambr.Phil.Soc. 36 (1940), 101

[34] Koepp, R.: Diplomarbeit, Göttingen 1963

[35] Kramers, H.A.: Physica 18 (1952), 665

[36] Lea, D.E.: Proc.Cambr.Phil.Soc. 30 (1934), 80

[37] Lippmann, H.: Diplomarbeit, Göttingen 1968

[38] McGinnies, R.: N.B.S.-Circulair No. 583 Suppl.

[39] McGowan, S.: Canad. J. Phys. 45 (1967), 439

[40] Onsager, L.: Phys. Rev. 54 (1938), 554

[41] Schmidt, W.F.: Z. Naturforsch. 23 (1968), 126

[42] Sullivan, A.H., J. Baarli: C.E.R.N.-Report 63-17 (1963)

[43] Sullivan, A.H.: Proc. of the Symp. on Microdosimetry, S. 295. Hrsg. von H.-G. Ebert, Euratom, 1968

[44] Tschirf, E.: Strahlentherapie 126 (1965), 145

[45] Ullmaier, H.: Z. Phys. 178 (1964), 44

[46] — Phys. Med. Biol. 11 (1966), 95

[47] Zanstra, H.: Physica 2 (1935), 817

L e b e n s l a u f

Am 12. 2. 1934 wurde ich in Berlin-Steglitz als Sohn des Verlagsbuchhändlers Friedrich Koepp und seiner Ehefrau Ilse geb. Rohlfs geboren.

Aus Klein-Machnow am Stadtrand von Berlin, wo ich meine Kindheit verlebte, wurden wir im Jahre 1943 nach Göttingen evakuiert. Hier besuchte ich nach der Volksschule das humanistische Max-Planck-Gymnasium. Das Abitur legte ich 1954 in Bonn ab, wohin unsere Familie 1951 übergesiedelt war.

Nach einer dreijährigen Physiklaboranten-Lehre bei der Fa. Leybold in Köln begann ich im Sommersemester 1957 das Physikstudium in Münster, wechselte 1958 nach Göttingen über und legte dort im Jahre 1960 die Vordiplomprüfung und im Jahre 1964 die Diplomprüfung ab. Die experimentelle Arbeit hatte ich im Institut für medizinische Physik und Biophysik angefertigt, wo auch die vorliegende Arbeit entstanden ist.
Ich bin seit 1960 verheiratet und habe zwei Kinder.

Göttingen, im Juli 1968

Reinhard Koepp

Bönecke-Druck - Clausthal-Zellerfeld 29